

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2001-176530

(43)Date of publication of application : 29.06.2001

(51)Int.Cl.

H01M 8/04

H01M 8/10

(21)Application number : 11-358271

(71)Applicant : TOYOTA MOTOR CORP

(22)Date of filing : 17.12.1999

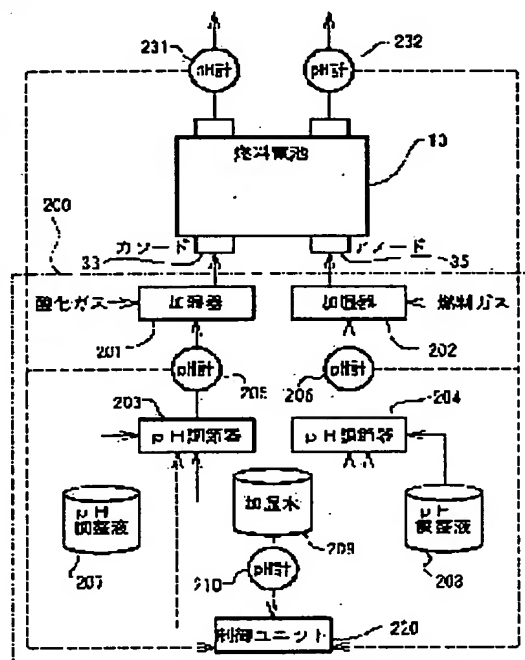
(72)Inventor : SUGIURA AIKO  
MAKINO HIROSHI

## (54) SOLID HIGH MOLECULAR FILM-TYPE FUEL CELL SYSTEM

## (57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To improve electromotive voltage per cell of a fuel cell.

SOLUTION: This solid high molecular fuel cell is provided with a mechanism for supplying humidifying water to an anode and a cathode with a fuel gas and an oxidation gas. The pH of both poles are controlled by properly mixing an alkali compound with respect to the anode and an acid compound with respect to the cathode into humidifying water. As the electromotive voltage of a cell is changed corresponding to the deviation of pH of both poles, the electromotive voltage of each cell can be improved by controlling the pH of the anode higher than that of the cathode.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

**\* NOTICES \***

**JPO and NCIPi are not responsible for any damages caused by the use of this translation.**

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

**CLAIMS**

---

[Claim(s)]

[Claim 1] The fuel cell equipped with a hydrogen pole and an oxygen pole on both sides of the electrolyte membrane of the solid-state macromolecule which penetrates a hydrogen ion, It is a fuel cell system equipped with the feed zone which supplies the charge of a feed material demanded at the time of a generation of electrical energy of this fuel cell to said hydrogen pole and an oxygen pole, respectively. Said feed zone A fuel cell system equipped with pH control means which carries out pH of said hydrogen pole to beyond pH of said oxygen pole by controlling pH ambient atmosphere about either [ at least ] said hydrogen pole or an oxygen pole.

[Claim 2] Said pH control means is a fuel cell system according to claim 1 which is the means which carries out pH of said hydrogen pole to beyond pH of said oxygen pole by controlling a part of [ at least ] pH of said charge of a feed material.

[Claim 3] Said pH control means is a fuel cell system according to claim 1 which pH of said hydrogen pole is the range which does not go into an alkali field, and is a means to perform said control.

[Claim 4] Said pH control means is a fuel cell system according to claim 1 which is the range where pH of said oxygen pole becomes more than an EQC, and is a means to perform said control to the lower limit of pH which becomes settled based on the corrosion resistance over the acid of the part through which said charge of a feed material passes within this fuel cell system.

[Claim 5] It is the fuel cell system which is a means to perform said control by mixing the compound with which it is a fuel cell system according to claim 1, said feed zone is a unit which supplies the humidification water which humidifies said electrolyte membrane as one of said the charges of a feed material, and said pH control means equips this humidification water with pH adjustment operation.

[Claim 6] It is the fuel cell system which is a fuel cell system according to claim 1, and is a means to have a pH detection means to detect further pH of the excretions discharged from said hydrogen pole and said oxygen pole, and to perform said control based on pH by which said pH control means was this detected.

[Claim 7] The fuel cell equipped with a hydrogen pole and an oxygen pole on both sides of the electrolyte membrane of the solid-state macromolecule which penetrates a hydrogen ion, It is the operating method of a fuel cell system equipped with the feed zone which supplies the charge of a feed material demanded at the time of a generation of electrical energy of this fuel cell to said hydrogen pole and an oxygen pole, respectively. (a) Process which controls pH ambient atmosphere about either [ at least ] said hydrogen pole or an oxygen pole to become beyond pH of said oxygen pole about pH of said hydrogen pole (b) Operating method of a fuel cell system equipped with the process which makes it generate electricity by supplying this charge of a feed material to said fuel cell.

---

[Translation done.]

## \* NOTICES \*

JPO and NCIPi are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

DETAILED DESCRIPTION

---

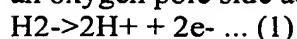
[Detailed Description of the Invention]

[0001]

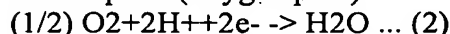
[Field of the Invention] This invention relates to the fuel cell system using the fuel cell equipped with a hydrogen pole and an oxygen pole on both sides of the electrolyte membrane of the solid-state macromolecule which penetrates a hydrogen ion.

[0002]

[Description of the Prior Art] The fuel cell equipped with a hydrogen pole and an oxygen pole on both sides of the electrolyte layer which penetrates a hydrogen ion is proposed. In a fuel cell, the reaction according to the following reaction formula (1) and (2) arises in cathode (hydrogen pole) and an anode plate (oxygen pole), respectively. The hydrogen ion produced on the hydrogen pole is in the hydration condition (henceforth hydronium ion) of  $H^+ (xH_2O)$ , and the reaction following by moving an electrolyte layer to an oxygen pole side advances. Cathode (hydrogen pole)



Anode plate (oxygen pole)



[0003] In recent years, power density can be miniaturized highly -- etc. -- the polymer electrolyte fuel cell which applied the poly membrane of hydrogen ion conductivity as an electrolyte layer attracts attention for the reason. A solid-state poly membrane shows electric conductivity according to a damp or wet condition. With the polymer electrolyte fuel cell, moisture is supplied to the solid-state poly membrane by generally humidifying hydrogen gas.

[0004]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] In the fuel cell, it is said that the theoretical potential difference by the side of a hydrogen pole and an oxygen pole, i.e., theoretical electromotive force, is about 1.23V. On the other hand, actually, it originated in various loss and the electrical potential difference outputted was about abbreviation 0.95-1V. This electromotive force is a value in case the current to extract is 0A. Generally, since electromotive force showed the inclination of monotone reduction when a fuel cell passed a current, the electromotive force with which real employment can be presented was still lower.

[0005] To use a fuel cell as a power source of various equipments, it is necessary to output the electrical potential difference demanded according to equipment. Conventionally the electromotive voltage per cell was low, and the number of cells connected since a demand electrical potential difference is outputted was increasing. Consequently, enlargement of the whole power unit and increase of a manufacturing cost were caused. Moreover, since it was synonymous with the operation effectiveness of a fuel cell being low, in order to extract predetermined power, many fuels were required for electromotive force being low.

[0006] This invention is made in order to solve this technical problem, and it aims at offering the technique for being stabilized and enabling the output of high electromotive force in the fuel cell system using the fuel cell of a solid-state macromolecule mold.

[0007]

[The means for solving a technical problem, and its operation and effectiveness] In order to solve a part of above-mentioned technical problem [ at least ], this invention adopted the next configuration. Namely, the fuel cell equipped with a hydrogen pole and an oxygen pole on both sides of the electrolyte membrane of the solid-state macromolecule with which this invention penetrates a hydrogen ion, In a fuel cell system equipped with the feed zone which supplies the charge of a feed material demanded at the time of a generation of electrical energy of this fuel cell to said hydrogen pole and an oxygen pole, respectively said feed zone By controlling pH ambient atmosphere about either [ at least ] said hydrogen pole or an oxygen

pole, it shall have pH control means which carries out pH of said hydrogen pole to beyond pH of said oxygen pole. pH ambient atmosphere is controllable by various approaches, and said pH control means can make a metaphor a means to control a part of [ at least ] pH of said charge of a feed material. Here, with the charge of a feed material, the humidification water for humidifying the fuel gas which is needed for a generation of electrical energy, oxidation gas, and a solid-state poly membrane etc. is mentioned. pH control is good also as what is performed about the both sides of a hydrogen pole and an oxygen pole, and good also as what is performed about either.

[0008] pH is a value defined by  $aH$ , then " $pH = -\ln(aH)$ " in hydrogen ion concentration. The above-mentioned pH control means is synonymous with a means to control the hydrogen ion concentration of a hydrogen pole lower than the hydrogen ion concentration of an oxygen pole. According to the fuel cell system which has the above-mentioned configuration, it can originate in the deflection of pH in a hydrogen pole and an oxygen pole, and the electromotive voltage per unit cell can be improved as shown below. Consequently, if a power unit is constituted using the fuel cell system of this invention, the number of cells which is needed since the electrical potential difference demanded is outputted can be reduced, and miniaturization of a power unit, reduction of a manufacturing cost, etc. can be aimed at.

[0009] The relation between the deflection of pH and an electromotive voltage is explained. The electromotive voltage produced in each cell of a fuel cell is the potential difference of a hydrogen pole and an oxygen pole. On two poles, the reaction shown by the reaction formula (1) shown previously, respectively and (2) has arisen, and the reaction in each pole is in equilibrium during a generation of electrical energy. It is known that the potential of each pole in the case of generally being in equilibrium is expressed with the relational expression called Nernst's equation. According to Nernst's equation, the reversible electrode potential  $E_H$  of a hydrogen pole and the reversible electrode potential  $E_O$  of an oxygen pole are expressed with a degree type (3) and (4), respectively.

[0010]

$E_H = E_{H0} + (RT/F) \times pH \dots (3)$   $E_O = E_{O0} - (RT/F) \times pH \dots (4)$  R: Gas constant;

T; absolute temperature (Kelvin temperature);

F: Faraday constant;

$E_{H0}$ : Hydrogen-electrode potential in  $pH=0$  (0V);

$E_{O0}$ : Oxygen electrode potential in  $pH=0$  (1.23V);

[0011] Drawing 1 is a graph which shows the theoretical value of the reversible electrode potential of a pH value, a hydrogen pole, and an oxygen pole. The above-mentioned Nernst's equation (3) and (4) are illustrated, a continuous line shows the reversible electrode potential of an oxygen pole, and a broken line shows the reversible electrode potential of a hydrogen pole. The potential of each pole falls as are illustrated, and a pH value increases. However, the potential difference of each pole in each pH value is fixed 1.23V a passage clear from an upper type (3) and (4). For example, when a pH value operates a fuel cell in the state of  $pH_1$  in drawing, the potential of an oxygen pole serves as a value expressed with a point  $Vo_1$ , and the potential of a hydrogen pole serves as a value expressed with a point  $Vh_1$ . At this time, the electromotive voltage of a fuel cell is equivalent to the potential difference  $V_1$  of an oxygen pole and a hydrogen pole, i.e., the electrical potential difference in drawing, and is theoretically set to 1.23V.

Conventionally, pH of a hydrogen pole and an oxygen pole was not controlled by the fuel cell at all, but has been operated in the condition that pH of two poles is almost equal, with it. As long as it operates in the condition that pH of two poles is almost equal, it is not concerned with by what kind of pH it operates, but the theoretical value of an electromotive voltage is 1.23V.

[0012] On the other hand, it is controlled by the fuel cell system of this invention so that pH of a hydrogen pole becomes higher than pH of an oxygen pole. Thus, an example in the condition that deflection is in pH of two poles was shown in drawing 1. For example, when the pH value of an oxygen pole is  $pH_o$ , the pH value of a hydrogen pole is controlled by the value  $pH_h$  higher than  $pH_o$ . Consequently, the potential of an oxygen pole serves as a value expressed the point  $Vo_2$  in drawing, and if the potential of a hydrogen pole is expressed the point  $Vh_2$  in drawing, it will become. The electromotive voltage of a cell serves as the value  $V_2$  in the difference among both, i.e., drawing. This electrical potential difference is larger than theoretical-value 1.23V a passage clear from drawing and an upper type (3), and (4). Thus, an electromotive voltage higher than a theoretical value can be obtained by controlling so that pH of a hydrogen pole becomes higher than pH of an oxygen pole. Although the theoretical value mentioned above is an electromotive voltage in the condition of not passing the current, the electrical potential difference at the time of energization can also be raised by improving this electrical potential difference. Although the Nernst's equation itself is well-known relational expression, as a result of re-evaluating this relational expression from a viewpoint of

improvement in an electromotive voltage in a fuel cell, the 1st technical meaning of this application is in the point which found out that the deflection of the pH value of an electrolyte layer led to improvement in an electromotive voltage on a hydrogen pole and the oxygen pole. Moreover, in the configuration which controls pH ambient atmosphere, the 2nd technical meaning is in the point that control of pH of a hydrogen pole and an oxygen pole found out that it could realize comparatively easily by controlling a part of [ at least ] pH of the charge of a feed material supplied to two poles by the approach of starting, by controlling a part of [ at least ] pH of the charge of a feed material.

[0013] In this invention, the difference between the pH value by the side of a hydrogen pole and the pH value by the side of an oxygen pole can be set up according to a target electromotive voltage a passage clear from drawing 1 and an upper type (3), and (4). It is the theoretical value which was shown in drawing 1 etc. to the last, and it also takes into consideration the voltage drop which originates in various loss in fact, and sets up the difference in the pH value of two poles.

[0014] Here, as for said pH control means, it is desirable that it shall be a means for pH of said hydrogen pole to be the range which does not go into an alkali field, and to perform said control from the following reasons. Since pH of a hydrogen pole is larger than pH of an oxygen pole, this has the upper limit of pH synonymous with performing said control in the range which does not go into an alkali field. In an alkali field, the hydroxide ion ( $\text{OH}^-$ ) comes to exist superfluously. Consequently, the reaction of a hydrogen ion ( $\text{H}^+$ ) and the hydroxide ion ( $\text{OH}^-$ ) will arise on the hydrogen pole, and the amount of the hydrogen ion contributed to a generation of electrical energy will decrease. Here, an alkali field means pH field where the hydroxide ion ( $\text{OH}^-$ ) exists in an excess, so that it checks a generation of electrical energy. Therefore, it is good in the range which this evil does not produce also as what controls pH of a hydrogen pole to the field by the side of alkali rather than neutrality ( $\text{pH}=7$ ). Of course, it cannot be overemphasized that it is more desirable that pH controls in the seven or less range.

[0015] Moreover, as for said pH control means, it is desirable that it shall be the range where pH of said oxygen pole becomes more than an EQC to the lower limit of pH which becomes settled based on the corrosion resistance over the acid of the part through which said charge of a feed material passes within this fuel cell system, and shall be a means to perform said control. With the part through which the charge of a feed material passes, not only a supply side but a discharge side is included. Fuel gas, oxidation gas, the separator that is the member which humidification water passes, the passage which discharges the generation water generated in the cell correspond. The lower limit of pH can be set up in consideration of the quality of the material of these parts, or the life of a fuel cell system. For example, when these parts are constituted from so-called stainless steel ingredient, it is desirable to make the lower limit of pH about into two.

[0016] In this invention, pH control means shall take various configurations, and when said feed zone is a unit which supplies the humidification water which humidifies said electrolyte membrane as one of said the charges of a feed material, said pH control means shall be a means to perform said control, by mixing the compound which equips this humidification water with pH adjustment operation. Humidification water is good also as what mixes in fuel gas and oxidation gas, and is supplied, and good also as what is supplied apart from these gas. About a hydrogen pole, as for a compound equipped with pH adjustment operation, the alkaline compound which does so the operation to which pH is raised, for example, a sodium hydroxide, a potassium hydroxide, etc. correspond. About an oxygen pole, the acid compound which does so the operation which reduces pH corresponds. When using the solid-state poly membrane which contains a sulfonic group as an ion exchange group for securing proton conductivity especially, it is desirable to mix a sulfuric acid in an oxygen pole side.

[0017] Supply of humidification water is not cared about as what is performed about an oxygen pole or a hydrogen pole. On the oxygen pole, since water is generated by the reaction at the time of a generation of electrical energy, usually humidification water is supplied to a hydrogen pole. Therefore, pH control means can constitute the humidification water which mixed the alkaline compound from a mode supplied only to a hydrogen pole side. If it carries out like this, there is an advantage which can constitute the fuel cell system of this application from little alteration from the fuel cell system of the conventional solid-state macromolecule membrane type.

[0018] Although pH control means is good also as what controls pH by the so-called open loop control, it is more desirable to carry out feedback control. For example, the configuration which is equipped with a pH detection means to detect pH of the excretions discharged, and controls based on this detected pH from said hydrogen pole and said oxygen pole can be taken. Since pH of a hydrogen pole and an oxygen pole changes according to the amount of the fuel gas supplied, oxidation gas, and humidification water, the amount of the

generation water generated by generation of electrical energy, etc., it becomes possible [controlling pH with a sufficient precision by carrying out feedback control].

[0019] In addition, during a generation of electrical energy, since water is generated, pH of excretions and pH of a hydrogen pole and an oxygen pole are not necessarily in agreement [a hydrogen ion is consumed on the hydrogen pole, and ] on the oxygen pole. The effect by this difference is avoidable by the following approach. The 1st is beforehand asked for the correspondence relation between pH of excretions, and pH of a hydrogen pole and an oxygen pole in an experiment etc., the storage means which memorized the result is prepared, and pH control means is the approach of taking the configuration which adjusts pH of the charge of a feed material with reference to this storage means. It is the approach of setting up pH desired value of the hydrogen pole for obtaining an electromotive voltage required for the 2nd, and each oxygen pole based on pH of excretions. In addition, you may control, assuming that pH of excretions and pH of a hydrogen pole and an oxygen pole are in agreement.

[0020] This invention is constituted as a fuel cell system explained above, and also it can consist of various modes. For example, you may constitute from modes which control pH of a hydrogen pole and an oxygen pole and operate a fuel cell system, such as an operating method and the control approach of pH.

[0021]

[Embodiment of the Invention] The gestalt of operation of this invention is explained in order of the following based on an example.

A. fuel cell system whole configuration: -- configuration [ of B. fuel cell ]: -- C.pH control processing: -- D. modification: [0022] A. The whole fuel cell system configuration : drawing 2 is the explanatory view showing the whole fuel cell system configuration as an example. A fuel cell system consists of a fuel cell 10 and a feed zone 200 which supplies fuel gas, oxidation gas, and humidification water there greatly. A fuel cell 10 is a polymer electrolyte fuel cell which used the macromolecule which has hydrogen conductivity as an electrolyte membrane. a feed zone 200 -- the hydrogen pole (it is hereafter called an anode) of a fuel cell -- hydrogen -- rich fuel gas is supplied with humidification water, and oxidation gas is supplied to an oxygen pole (it is hereafter called a cathode) with humidification water. In this example, air is used as oxidation gas.

[0023] The configuration which supplies fuel gas and humidification water to an anode side among the configurations of a feed zone 200 is explained. Humidification water is stored in the humidification water tank 209. The feed zone 200 is storing pH adjustment liquid for adjusting pH of humidification water in the adjustment liquid tank 208. Since it is adjusted so that pH by the side of an anode may become higher than pH by the side of a cathode, as pH adjustment liquid, alkaline solutions, such as a sodium-hydroxide water solution and a potassium-hydroxide water solution, are used, as mentioned later. After being mixed with pH adjustment liquid with the pH controller 204 and adjusting humidification water to predetermined pH, it is supplied to a humidifier 202. the hydrogen which reformed the methanol and the hydrocarbon separately in the humidifier 202, and was obtained -- the hydrogen gas stored using rich fuel gas or a hydrogen storing metal alloy is supplied. If a humidifier 202 is made to pass fuel gas, the distributed gas with which the humidification water with which pH was adjusted into fuel gas was distributed in the shape of a fog will be generated. Distributed gas is supplied to the fuel gas feed hopper 35 by the side of an anode in this condition.

[0024] By controlling pH of humidification water, pH of the distributed gas supplied to an anode side is controllable. This control is realized by the control unit 220. The control unit 220 is constituted as a microcomputer which equips the interior with CPU, RAM, and ROM. In order to enable pH control by the control unit, the pH meter 210 which detects pH of humidification water, the pH meter 206 which detects pH of the humidification water supplied to a humidifier 202, and the excretions 232 further discharged from the anode side of a fuel cell 10, for example, the pH meter which detects pH of generation water, are formed in the feed zone 200. The signal detected with each pH meter is inputted into a control unit 220. Based on this detection result, a control unit 220 controls the pH controller 204 according to the control processing mentioned later. All over drawing, the broken line showed the detecting signal and the control signal.

[0025] The configuration which supplies oxidation gas and humidification water to a cathode side is the same as that of an anode side. That is, the pH controller 203 and the adjustment liquid tank 207 adjust pH of humidification water, the distributed gas from which humidification water was distributed in the shape of a fog in oxidation gas with the humidifier 201 is generated, and the oxidation gas supply opening 33 by the side of a cathode is supplied. pH is controlled by the cathode side to a low value so that distributed gas serves as acidity, as mentioned later. Therefore, unlike the anode side, the sulfuric acid was used as pH adjustment liquid. A control unit 220 also performs pH control by the side of a cathode. In order to enable



this control processing, the pH meter 205 which detects pH of the humidification water supplied to a humidifier 201 like an anode side and the excretions 231 discharged from the cathode side of a fuel cell 10, for example, the pH meter which detects pH of generation water, are formed also in the cathode side.

[0026] B. The configuration of a fuel cell : drawing 3 is a perspective view showing the appearance of the fuel cell 10 of this example. A fuel cell 10 carries out the predetermined number laminating of the cel 100, and is formed as illustrated. The cel 100 is formed as a polymer electrolyte fuel cell, respectively, and each cel produces a 1V a little more than electromotive voltage. The cel 100 is making the structure which inserted the oxygen pole 136, the electrolyte membrane 132, and the hydrogen pole 134 into this sequence with separators 110 and 120. The separators 110 and 120 of the adjoining cel 100 are shared by the fuel cell 10, respectively. About the detail structure of a cel 100, it mentions later.

[0027] The laminating of the fuel cell 10 is carried out to the order of an end plate 12, an electric insulating plate 16, a collecting electrode plate 18, two or more cels 100, a collecting electrode plate 20, an electric insulating plate 22, and an end plate 14, and it consists of ends. End plates 12 and 14 are formed with metals, such as steel, in order to secure rigidity. collecting electrode plates 18 and 20 -- gas, such as substantia-compacta carbon and a copper plate, -- it is formed of a conductive member [ \*\*\*\* / un-], and electric insulating plates 16 and 22 are formed of insulating members, such as rubber and resin. Output terminals 19 and 21 are formed in collecting electrode plates 18 and 20, respectively, and an output of the power produced with the fuel cell 10 is possible.

[0028] The fuel gas feed hopper 35, the fuel gas exhaust port 36, the oxidation gas supply opening 33, the oxidation gas exhaust 34, the cooling water feed hopper 31, and the cooling water exhaust port 32 are formed in one end plate 14. The fuel gas supplied to the fuel cell 10 from the fuel gas feed hopper 35 is distributed to each cel 100, flowing toward an end plate 12. After the fuel gas distributed to each cel 100 flows the passage in a cel 100 caudad from the upper part in drawing, it flows to an end-plate 14 side, and is discharged from the fuel gas exhaust port 36. After being supplied from the oxidation gas supply opening 33, while oxidation gas also flows toward an end plate 12 similarly, after being distributed to each cel 100 and flowing the passage in each cel 100, it is discharged from the oxidation gas exhaust 34. The gas passageway of each cel 100 is formed inside so that a fuel cell 10 can realize flow of such gas.

[0029] The seal of the boundary region where the electrolyte membrane 132 which constitutes each cel 100 of a fuel cell 10 touches separators 110 and 120 is carried out. Fuel gas and oxidation gas begin to leak from the cel 100 interior, and this seal plays the role which prevents that both mix. Although the fuel cell 10 omitted illustration, where predetermined thrust is applied in the direction of a laminating, it is concluded and held with a bolt and a nut. In order to hold a laminating condition with thrust, it is not necessary to necessarily use a bolt and a nut for example, and is good also as a thing using a stack receipt case. In addition, although the case where the fuel cell 10 consisted of single stacks here was illustrated, it is good also as what is constituted from two or more stacks.

[0030] Drawing 4 is the perspective view showing the structure of a cel 100. The cel 100 is constituted as a polymer electrolyte fuel cell. The cel 100 has the structure which put the electrolyte membrane 132 on the hydrogen pole 134 and the oxygen pole 136, and sandwiched the both sides with separators 110 and 120 further. The oxygen pole 136 exists in the location which hid in the electrolyte membrane 132 on account of illustration. The hydrogen pole 134 and the oxygen pole 136 are gas diffusion electrodes. Two or more concave convex ribs are formed in the field where separators 110 and 120 counter with the hydrogen pole 134 and the oxygen pole 136. When separators 110 and 120 put the hydrogen pole 134 and the oxygen pole 136 from both sides further, the oxidation gas passageway 122 is formed between the fuel gas passage 112 and the oxygen pole 136 between the hydrogen poles 134. The rib is formed in both sides, as for separators 110 and 120, one side forms the fuel gas passage 112 between the hydrogen poles 134, and other sides form the oxidation gas passageway 122 between the oxygen poles 136 with which the adjoining cel 100 is equipped. Thus, separators 110 and 120 have played the role which separates the flow of fuel gas and oxidation gas between the adjoining cels while forming a gas passageway between gas diffusion electrodes.

[0031] An electrolyte membrane 132 is the ion exchange membrane of proton conductivity formed by solid-state polymeric materials, for example, fluororesin, and shows good electrical conductivity according to a damp or wet condition. As an electrolyte membrane 132, the Nafion film (Du Pont make) etc. is applicable, for example. The platinum as a catalyst is applied to the front face of an electrolyte membrane 132. In this example, the organic solvent was made to distribute the carbon powder which supported the platinum as a catalyst, and after carrying out optimum dose addition and pasting an electrolytic solution (for example, Aldrich Chemical, Nafion Solution), the catalyst was applied by the approach of screen-stenciling on an electrolyte membrane 132. The formation approach of a catalyst bed is good also as what carries out film

shaping of the paste containing the carbon powder which could apply various approaches to others, for example, supported the above-mentioned catalyst, produces a sheet, and is pressed on an electrolyte membrane 132. Moreover, the alloy which consists of platinum and other metals can also be used for a catalyst. The hydrogen pole 134 and the oxygen pole 136 are formed of the carbon cross which wove the carbon fiber. It is good also as what forms the hydrogen pole 134 and the oxygen pole 136 by the carbon paper which consists of a carbon fiber, or carbon felt. Moreover, since the above-mentioned catalyst should just intervene between a gas diffusion electrode and an electrolyte membrane 132, it is good also as what applies a catalyst to the side which replaces with the approach of applying a catalyst to an electrolyte membrane 132 side, and touches the electrolyte membrane 132 of the hydrogen pole 134 and the oxygen pole 136.

[0032] Separators 110 and 120 are formed by the conductive gas non-penetrated member, for example, the substantia-compacta carbon which compressed carbon and it presupposed gas un-penetrating. Two or more ribs with which separators 110 and 120 have been arranged in parallel to the both sides are formed. It is not necessary to form a rib in parallel by both sides, and it can not necessarily form intersecting perpendicularly for every field etc. at an angle of versatility. Moreover, if a rib is the configuration which can form the passage of fuel gas and oxidation gas, it does not necessarily need to be an parallel groove.

[0033] The cooling water holes 151 and 152 of a circular cross section are formed in separators 110 and 120 at two places of the periphery. When these cooling water holes 151 and 152 carry out the laminating of the cel 100, they form the cooling water way which penetrates a fuel cell 10 in the direction of a laminating. The fuel gas holes 153 and 154 and the oxidation gas eyes 155 and 156 of a long and slender configuration which meet each side are formed near [ each ] the side of separators 110 and 1120. When the fuel gas holes 153 and 154 and the oxidation gas eyes 155 and 156 form a fuel cell 10 by carrying out the laminating of the cel 100, they form the fuel gas passage 112 and the oxidation gas passageway 122 which penetrate a fuel cell 10 in the direction of a laminating. In this example, fuel gas exhaust passage is formed along a fuel gas supply way and the downward side along the upper side of drawing 3 . Moreover, oxidation gas exhaust passage is formed along the side of an oxidation gas supply way and right-hand side along the left-hand side side.

[0034] The fuel gas feed hopper 35 of a fuel cell 10 is connected with the fuel gas supply way, and the fuel gas exhaust port 36 is connected with fuel gas exhaust passage. The fuel gas supplied from the fuel gas feed hopper 35 flows into the fuel gas passage 112 of each cel 100 through a fuel gas supply way. And after a reaction predetermined on the hydrogen pole 134 is presented, it flows out of fuel gas exhaust passage into the fuel gas exhaust port 36. Oxidation gas also flows in the same path. The oxidation gas supply opening 33 of a fuel cell 10 is connected with the oxidation gas supply way, and the oxidation gas exhaust 34 is connected with oxidation gas exhaust passage. The oxidation gas supplied from the oxidation gas supply opening 33 flows into the oxidation gas passageway 122 of each cel 100 through an oxidation gas supply way. And after a reaction predetermined on the oxygen pole 136 is presented, it flows out of oxidation gas exhaust passage into the oxidation gas exhaust 34.

[0035] With the fuel cell 10, the cooling separator 140 is formed at a rate of one sheet every five cels 100. The cooling separator 140 is a separator for forming the cooling water way which cools a cel 100. The meandering cooling water slot 142 which connects a cooling water hole is formed in the cooling separator 140. The cooling separator 140 and the field which counters are a flat field without a rib among separators 110 and 120, and the slot established in the cooling separator 140 forms a cooling water way among separators 110 and 120. In addition, separators 110 and 120 and the cooling separator 140 can be formed with the various ingredients which have conductivity besides substantia-compacta carbon. For example, rigidity and heat-conducting characteristic may be thought as important and you may form with metals, such as a copper alloy and an aluminium alloy. Moreover, the rate of forming the cooling separator 140 can be set up in the range which was suitable for cooling according to conditions, such as calorific value of the cel 100 according to the demand output of a fuel cell 10, temperature of cooling water, and a flow rate.

[0036] In the above explanation, although illustration was omitted, fuel gas, oxidation gas, the passage that supplies cooling water, and the passage to discharge are established in the fuel cell 10, respectively. In this example, such passage is formed with the so-called stainless steel ingredient.

[0037] C. pH control processing : in a feed zone 200, pH of the distributed gas supplied to an anode and each cathode is controllable by this example by controlling pH of humidification water as explained previously. Hereafter, the contents of pH control processing are explained.

[0038] The desired value (target pH) of pH of the distributed gas to an anode and a cathode is set up based on the following three conditions.



1st condition: -- 2nd condition [ of the electromotive voltage per each cel / of improvement ]: -- 3rd condition [ of generating efficiency / of improvement ]: -- prevention [0039] of an acid or caustic embrittlement Drawing 5 is the explanatory view showing the setting approach of the desired value of pH. pH of a cathode was taken along the axis of abscissa, pH of an anode was taken along the axis of ordinate, and it was shown. Here, an ideal condition shall be considered first and the axis of ordinate and the axis of abscissa shall show pH of the distributed gas in the time of a generation of electrical energy in a cel 100 being presented, respectively. The theoretical value of the electromotive voltage of a cel 100 becomes large, so that it changes with the deflection of pH of an anode and a cathode and pH of an anode becomes higher than pH of a cathode, as drawing 1 and Nernst's equation (3), and (4) explained previously. This field turns into an upper left field, i.e., the field shown by the arrow head, from the slanting line in drawing 5. If the target pH of an anode and the target pH of a cathode are set up so that it may belong to this field, the electromotive voltage per cel can be improved according to the value.

[0040] The 2nd condition is realized by controlling consumption of the hydrogen ion generated by the anode side. The hydrogen ion generated by the anode side is contributed to a generation of electrical energy by moving an electrolyte membrane and resulting in a cathode side. If the reaction from a hydrogen ion to water arises with an anode, the part and a hydrogen ion will be exhausted vainly and generating efficiency will fall. In order to control this reaction, it is desirable to reduce the hydroxide ion (OH-) which exists in an anode. From this viewpoint, pH of an anode shall be set or less to seven by this example.

[0041] The 3rd condition is fulfilled by setting up the threshold value of pH in consideration of the corrosion resistance of the ingredient which constitutes a fuel cell system. In this example, the lower limit of pH was set as 2 from the fuel cell 10 by considering corrosion resistance of fuel gas, oxidation gas, the passage that discharges cooling water, especially the passage which discharges the oxidation gas containing the generation water in a fuel cell 10 as consultation.

[0042] The range which fulfills three conditions of having explained above serves as the field Aopt which attached hatching in drawing 5. pH with which setting \*\*\*\* is satisfied of this electromotive voltage is expressed with the straight line shown in drawing 5 to Vtg in the desired value of the electromotive voltage per cel. Therefore, the target pH of an anode and a cathode can be set up by choosing the point on this straight line suitably in Field Aopt. For example, if the point P in drawing 5 is chosen, in the desired value by the side of an anode, the desired value by the side of pHa and a cathode will serve as pHc.

[0043] Theoretically, the target pH of an anode and a cathode can be set up based on above-mentioned conditions. However, in fact, while passing a cel 100, with an anode, a generation of electrical energy is presented with a hydrogen ion, and since generation water arises, pH of distributed gas is changed with a cathode. Moreover, usually the electromotive voltage in a cel 100 becomes lower than a theoretical value by various loss. Even if it controls pH by the side of pHa and a cathode for pH by the side of an anode by these causes to pHc in drawing 5, according to them, the electromotive voltage of Vtg cannot necessarily actually be realized.

[0044] In this example, the target pH of an anode and a cathode was set up based on pH of an anode and the excretions of a cathode, i.e., off-gas and generation water, as a realistic approach in consideration of this effect. That is, pH of distributed gas is experimentally fluctuated to various values, and pH of the excretions of an anode and a cathode and the relation of an electromotive voltage are measured. Consequently, the excretions pH of the anode which can realize a target electromotive voltage, and a cathode were set up. At the time of actual operation, a target electromotive voltage is realizable by carrying out feedback control so that pH of excretions may serve as this desired value. About the 2nd condition and the 3rd condition, it set up so that pH of excretions might become 2 or more and 7 or less.

[0045] Control of pH is performed by performing pH control manipulation routine which a control unit 220 shows below. Drawing 6 is the flow chart of pH control manipulation routine. A control unit 220 performs this processing periodically during operation of a fuel cell system. If processing is started, CPU of a control unit 220 will input the target pH of an anode and a cathode (step S10). This target pH is an anode, the excretions discharged from a cathode, and the value set up mainly as a target pH of generation water as it was explained previously. In addition, this target pH may be set up as a value fixed about the anode and the cathode, and may be set up with the deflection of pH of an anode and a cathode.

[0046] Next, pH of the distributed gas of an anode and a cathode is controlled by feedback control so that pH of the generation water actually discharged serves as above-mentioned desired value. For this reason, CPU detects pH of generation water first based on the detecting signal of the pH meter 231,232 shown in drawing 2 (step S12). And based on the desired value of pH, and the deflection of the detected generation water pH, the target pH of the humidification water (it is hereafter called a feedwater) supplied to a

humidifier 201,202 is set up (step S14). Desired value can be set up by the approach of setting up the predetermined gain beforehand set up by experiment etc. by taking advantage of deflection, the method of memorizing the relation between deflection and desired value on the table, etc.

[0047] Next, with a pH meter 205,206, pH of the feedwater actually supplied to the humidifier 201,202 is detected, and the amount of pH adjustment liquid is set up based on deflection with Target pH. Under the present circumstances, since the humidification water currently stored in the humidification water tank 209 may incline toward acidity or alkalinity, pH of humidification water will be measured with a pH meter 210, that result will also be taken into consideration, and the amount of pH adjustment liquid will be set up (steps S16 and S18). The case where the amount of pH adjustment liquid was set up into drawing 6 based on "desired value of Feedwater pH - (feedwater pH-humidification water pH)" as an example in consideration of pH of humidification water of an approach was illustrated. It is not limited to this mode. The amount of pH adjustment liquid can be set up by the approach using the gain set up beforehand, the approach using a table, etc. like step S14. CPU controls the amount of the humidification water supplied to the pH controller 203,204, and pH adjustment liquid, respectively, and controls a feedwater at Target pH (step S20).

[0048] Although here explained as what sets up gradually the desired value of a feedwater, and the amount of pH adjustment liquid, since an actual controlled variable is an amount of pH adjustment liquid, it can also take the mode which sets up the amount of pH adjustment liquid directly on an operation or a table based on the detection result of pH of generation water, pH of a feedwater, and pH of humidification water. In this example, the mode which detects a pH value and carries out pH control by three places, generation water, a feedwater, and humidification water, was illustrated. When controlling the amount of pH adjustment liquid to humidification water and controlling pH, since responsibility is comparatively low, responsibility and the precision of control can be improved by detecting pH by two or more places in this way. Of course, only pH of the generation water of a fuel cell 10 is detected, and it does not matter as what performs feedback based on this. In this case, a pH meter 206,210 can be deleted and simplification of a system can be attained.

[0049] In this example, desired value was set up by pH of the generation water of a fuel cell 10, and the mode which carries out pH control was illustrated. According to the structure of a system, various setup is possible for the desired value of pH. For example, when the relation between pH of a feedwater and an electromotive voltage can be grasped by experiment etc., it is good also as what sets up desired value by pH of a feedwater and performs control based on this. When pH is detectable by one part of the cells 100, it is also possible to perform control based on this.

[0050] According to the fuel cell system of this example explained above, improvement in an electromotive voltage can be aimed at by controlling pH of the distributed gas supplied to an anode and a cathode. Consequently, the number of cells demanded in order to obtain a target electromotive voltage can be reduced, and a system can be miniaturized. Moreover, since the hydroxide ion ( $\text{OH}^-$ ) is controlled by the range which does not exist superfluously, pH by the side of an anode can control that a hydrogen ion is consumed vainly, and can improve generating efficiency. Furthermore, since the lower limit of pH is set up in the range in consideration of the corrosion resistance over the acid of passage, it does not contract the life of a fuel cell system extremely.

[0051] Moreover, since an anode and the humidification water used for humidification of a cathode are used for the fuel cell system of this example, it also has the advantage which can control pH of each pole comparatively easily. Generally, humidification of an electrolyte membrane is required, it can usually come out to have the device which supplies humidification water, and, for a certain reason, it can control pH by the polymer electrolyte fuel cell using this device. Therefore, on the occasion of pH control, there is an advantage which does not require the large-scale alteration of a fuel cell system.

[0052] D. Modification : drawing 7 is the explanatory view showing the whole fuel cell system configuration as a modification. In the above-mentioned example, the mode which controls pH about the both sides of an anode and a cathode was illustrated. From a viewpoint which realizes a target electromotive voltage, the deflection of pH of an anode and a cathode is important as drawing 1 etc. already explained. Therefore, the device in which pH is adjusted is good also as what is prepared in an anode or a cathode. In the fuel cell system of a modification, the case where the device in which pH is adjusted only to an anode side was established from this viewpoint was illustrated.

[0053] In the fuel cell system of a modification, in feed zone 200A, the anode side is equipped with the device for controlling pH, such as the pH controller 204 and a humidifier 202, as well as an example as illustrated. About a cathode side, oxidation gas is supplied directly. Since a cathode side is fully humidified with the generation water by the reaction at the time of a generation of electrical energy, it does not perform supply of humidification water, either.

[0054] By controlling the amount of pH adjustment liquid by the side of an anode, control unit 220A controls the deflection of pH of a cathode and an anode to desired value. In order to realize this control, pH of generation water, a feedwater, and humidification water is detected with a pH meter 232,206,210 like an example about an anode side. About a cathode side, only pH of generation water is detected with a pH meter 231.

[0055] The contents of control processing are the same as an example (refer to drawing 6 ). However, although the example explained as that to which the target pH of an anode and a cathode is set, respectively, the desired value of pH by the side of an anode is different with a modification at the point which applies the desired value of deflection to pH of the generation water by the side of the cathode detected with the pH meter 231, and is set as it. In this way, the point which controls the pH controller 204 to realize the set-up target pH, and controls the amount of pH adjustment liquid is the same as an example.

[0056] Since it will end if the device which controls pH only to an anode according to the fuel cell system of a modification is established, there is an advantage which the structure of a system can simplify further. Generally, with a polymer electrolyte fuel cell, it originates in a hydrogen ion combining with a water molecule, turning into hydronium ion, and moving to a cathode side, and humidification by the side of an anode is made indispensable. In the modification, in order to prepare the device which controls pH only in an anode side, it can use also [ device / required for humidification of an electrolyte membrane ], and there is an advantage which can simplify a system further. In addition, also in a modification, it is also possible to take the configuration which deletes a pH meter 206,210.

[0057] In addition, although pH by the side of a cathode cannot be controlled directly in the modification, when the corrosion resistance of passage is taken into consideration, it is desirable [ pH by the side of a cathode ] at the time of the usual operation not to make it change a lot.

[0058] In the example and modification which were explained above, the mode which mixes humidification water in fuel gas and oxidation gas, and is supplied to a fuel cell 10 was illustrated. On the other hand, it is good also as what takes the mode which supplies humidification water apart from gas. pH of each pole is controllable by controlling the amount of pH adjustment liquid to humidification water also in this case. It is good by supplying pH adjustment liquid to a fuel cell 10 directly also as what performs pH control. It is good also as a thing using gases, such as ammonia in which alkalinity is shown, by a liquid's necessarily not performing pH control, for example, combining with humidification water on the anode pole. This invention can take the various modes which control pH of an anode and a cathode through the various charges of a feed material supplied to a fuel cell 10. As mentioned above, although the various examples of this invention were explained, it cannot be overemphasized that configurations various in the range which this invention is not limited to these examples and does not deviate from the meaning can be taken.

---

[Translation done.]

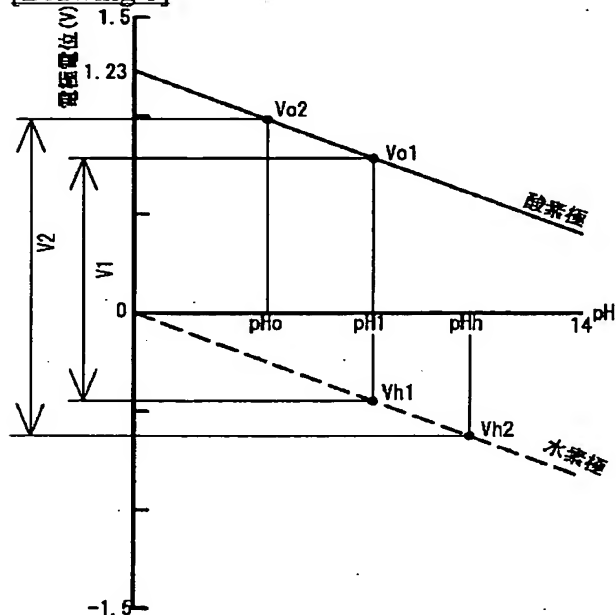
## \* NOTICES \*

JPO and NCIPi are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

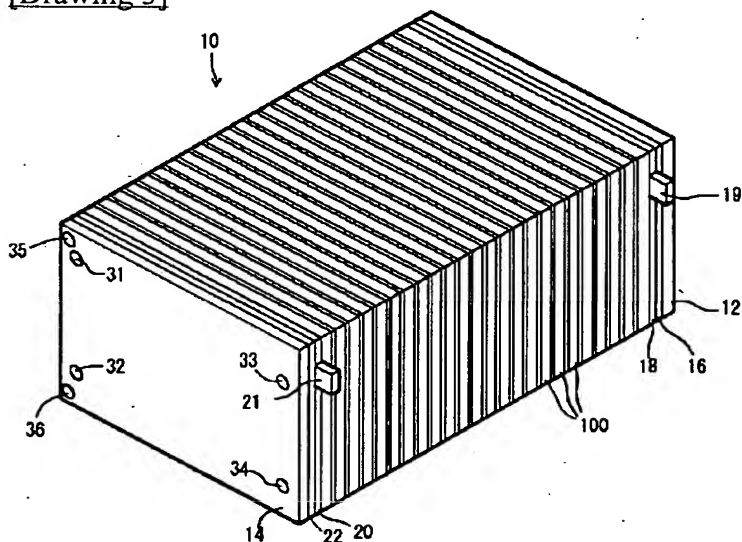
1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

## DRAWINGS

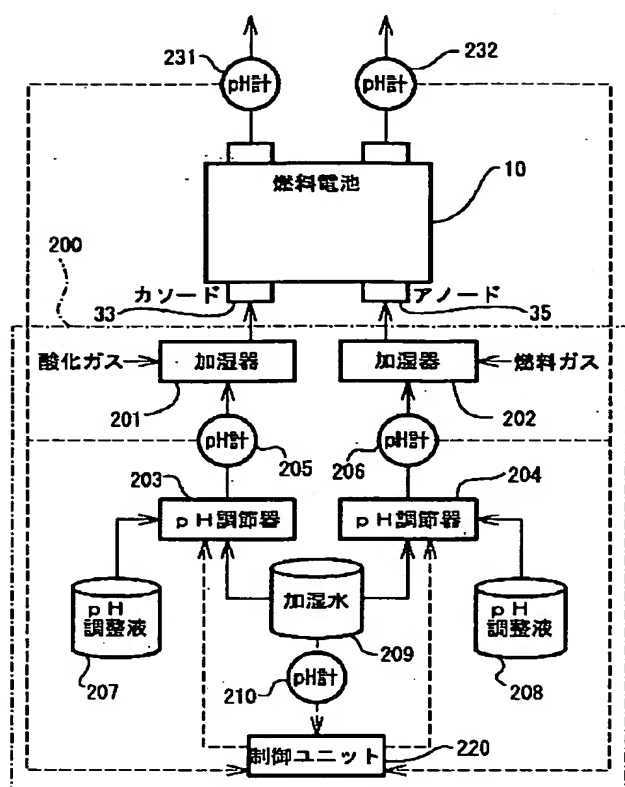
[Drawing 1]



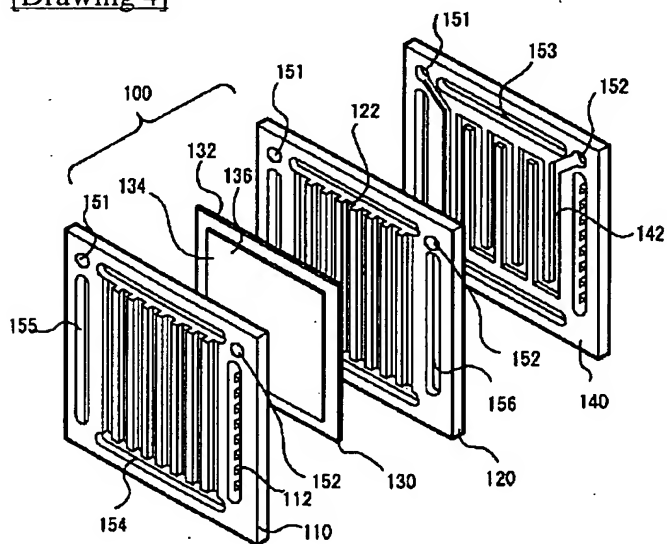
[Drawing 3]



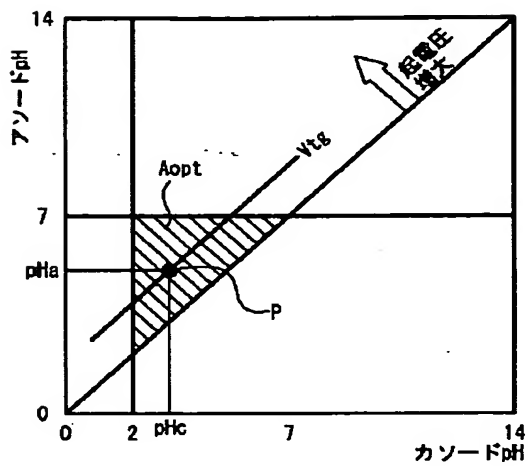
[Drawing 2]



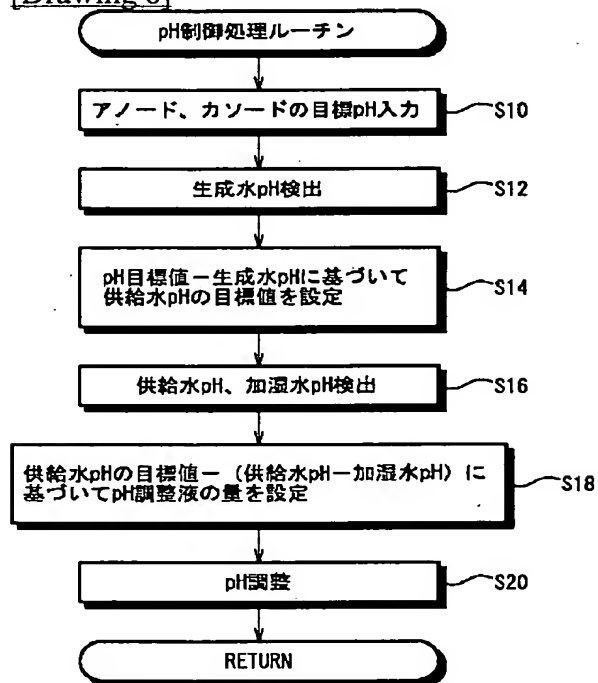
[Drawing 4]



[Drawing 5]

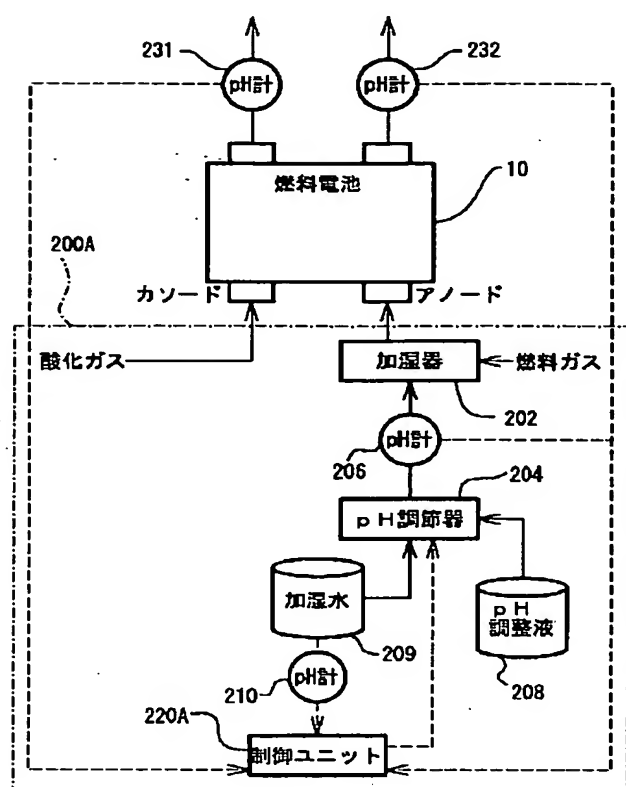


[Drawing 6]



[Drawing 7]





[Translation done.]

# SOLID HIGH MOLECULAR FILM-TYPE FUEL CELL SYSTEM

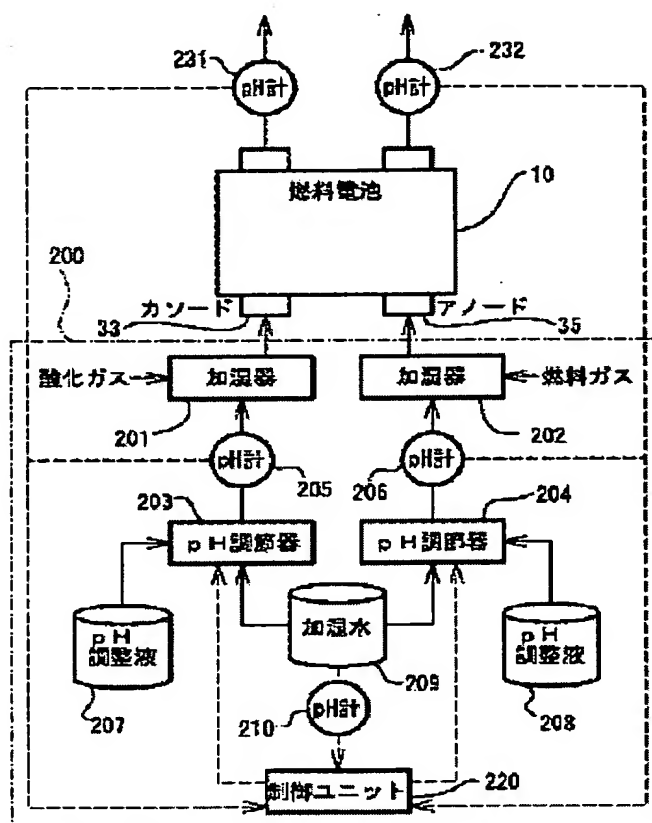
Patent number: JP2001176530  
Publication date: 2001-06-29  
Inventor: SUGIURA AIKO; MAKINO HIROSHI  
Applicant: TOYOTA MOTOR CORP  
Classification:  
- international: H01M8/04; H01M8/04; (IPC1-7): H01M8/04  
- european:  
Application number: JP19990358271 19991217  
Priority number(s): JP19990358271 19991217

Report a data error here

## Abstract of JP2001176530

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To improve electromotive voltage per cell of a fuel cell.

**SOLUTION:** This solid high molecular fuel cell is provided with a mechanism for supplying humidifying water to an anode and a cathode with a fuel gas and an oxidation gas. The pH of both poles are controlled by properly mixing an alkali compound with respect to the anode and an acid compound with respect to the cathode into humidifying water. As the electromotive voltage of a cell is changed corresponding to the deviation of pH of both poles, the electromotive voltage of each cell can be improved by controlling the pH of the anode higher than that of the cathode.



Data supplied from the [esp@cenet](mailto:esp@cenet) database - Worldwide

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号  
特開2001-176530  
(P2001-176530A)

(43) 公開日 平成13年6月29日 (2001.6.29)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テーマコード (参考)
H 0 1 M	8/04	H 0 1 M	P 5 H 0 2 6
	8/10		5 H 0 2 7

審査請求 未請求 請求項の数 7 O L (全 11 頁)

(21) 出願番号 特願平11-358271

(22) 出願日 平成11年12月17日 (1999.12.17)

(71) 出願人 000003207

トヨタ自動車株式会社  
愛知県豊田市トヨタ町1番地

(72) 発明者 杉浦 愛子

愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内

(72) 発明者 牧野 浩

愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内

(74) 代理人 100096817

弁理士 五十嵐 孝雄 (外3名)

Fターム (参考) 5H026 AA06 CC03 CC08

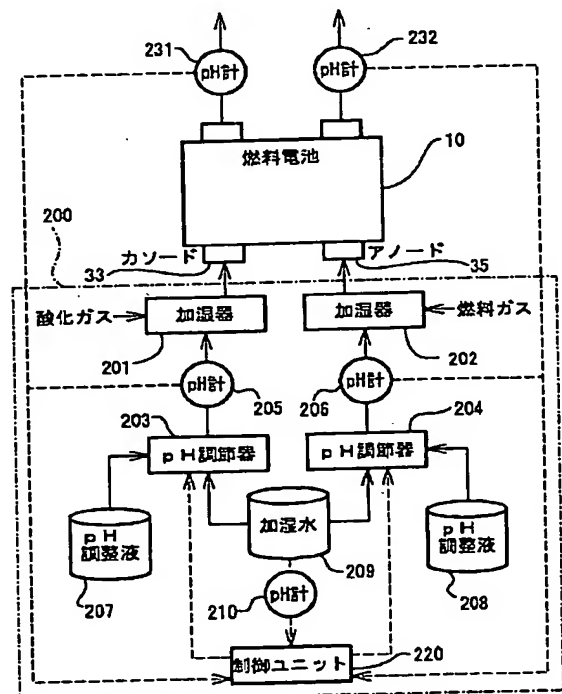
5H027 AA06 CC06 KK00 MM01

(54) 【発明の名称】 固体高分子膜型燃料電池システム

(57) 【要約】

【課題】 燃料電池のセル当たりの起電圧を向上する。

【解決手段】 固体高分子型燃料電池において、アノード、カソードに燃料ガス、酸化ガスとともに加湿水を供給する機構を設ける。アノードにはアルカリ性、カソードには酸性の化合物を加湿水に適宜混入することによって、両極のpHを制御する。セルの起電圧は両極のpHの偏差に応じて変化するから、アノードのpHがカソードのpHよりも高くなるように制御することによって各セルの起電圧を向上することができる。



## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】 水素イオンを透過する固体高分子の電解質膜を挟んで水素極と酸素極とを備える燃料電池と、該燃料電池の発電時に要求される供給材料を前記水素極および酸素極にそれぞれ供給する供給部とを備える燃料電池システムであって、

前記供給部は、前記水素極および酸素極の少なくとも一方について pH 雰囲気制御することにより、前記水素極の pH を前記酸素極の pH 以上とする pH 制御手段を備える燃料電池システム。

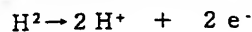
【請求項 2】 前記 pH 制御手段は、前記供給材料の少なくとも一部の pH を制御することにより、前記水素極の pH を前記酸素極の pH 以上とする手段である請求項 1 記載の燃料電池システム。

【請求項 3】 前記 pH 制御手段は、前記水素極の pH がアルカリ領域に入らない範囲で、前記制御を行う手段である請求項 1 記載の燃料電池システム。

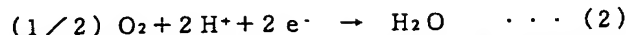
【請求項 4】 前記 pH 制御手段は、該燃料電池システム内で前記供給材料が通過する部位の酸に対する耐食性に基づいて定まる pH の下限値に対し、前記酸素極の pH が同等以上となる範囲で、前記制御を行う手段である請求項 1 記載の燃料電池システム。

【請求項 5】 請求項 1 記載の燃料電池システムであって、前記供給部は、前記供給材料の一つとして前記電解質膜を加湿する加湿水を供給するユニットであり、前記 pH 制御手段は、該加湿水に pH 調整作用を備える化合物を混入することにより、前記制御を行う手段である燃料電池システム。

【請求項 6】 請求項 1 記載の燃料電池システムであつ



陽極（酸素極）



【0003】 近年では、出力密度が高く小型化が可能である等の理由により、水素イオン導電性の高分子膜を電解質層として適用した固体高分子型燃料電池が注目されている。固体高分子膜は湿潤状態で電気導性を示す。固体高分子型燃料電池では、一般に水素ガスを加湿することで固体高分子膜に水分を供給している。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】 燃料電池において、水素極側と酸素極側の理論的な電位差、即ち理論的な起電力は約 1.23 V であるといわれている。これに対し、現実には、種々の損失に起因して、出力される電圧は約 0.95～1 V 程度であった。この起電力は、抽出する電流が 0 アンペアの場合の値である。一般に燃料電池は電流を流すことによって起電力が単調減少の傾向を示すから、実運用に供し得る起電力は、更に低くなっている。

【0005】 種々の装置の電源として燃料電池を使用す

て、

さらに、前記水素極および前記酸素極から排出される排出物の pH を検出する pH 検出手段を備え、

前記 pH 制御手段は、該検出された pH に基づいて前記制御を行う手段である燃料電池システム。

【請求項 7】 水素イオンを透過する固体高分子の電解質膜を挟んで水素極と酸素極とを備える燃料電池と、該燃料電池の発電時に要求される供給材料を前記水素極および酸素極にそれぞれ供給する供給部とを備える燃料電池システムの運転方法であって、(a) 前記水素極の pH を前記酸素極の pH 以上となるよう前記水素極および酸素極の少なくとも一方について pH 雰囲気制御する工程と、(b) 該供給材料を前記燃料電池に供給して発電を行わせる工程とを備える燃料電池システムの運転方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、水素イオンを透過する固体高分子の電解質膜を挟んで水素極と酸素極とを備える燃料電池を用いた燃料電池システムに関する。

【0002】

【従来の技術】 水素イオンを透過する電解質層を挟んで水素極と酸素極とを備える燃料電池が提案されている。燃料電池では、陰極（水素極）と陽極（酸素極）でそれぞれ次の反応式 (1) (2) に応じた反応が生じる。水素極で生じた水素イオンは、 $H^+ (x H_2O)$  の水和状態（以下、ヒドラニウムイオンという）で、酸素極側に電解質層を移動することで下記の反応が進行する。陰極（水素極）



場合には、装置に応じて要求される電圧を出力する必要がある。従来は、セル当たりの起電圧が低く、要求電圧を出力するために接続するセル数が増大していた。この結果、電源装置全体の大型化および製造コストの増大を招いていた。また、起電力が低いことは、燃料電池の運転効率が低いことと同義であるから、所定の電力を抽出するために多くの燃料が必要であった。

【0006】 本発明は、かかる課題を解決するためになされたものであり、固体高分子型の燃料電池を利用した燃料電池システムにおいて、高い起電力を安定して出力可能とするための技術を提供することを目的とする。

【0007】

【課題を解決するための手段およびその作用・効果】 上述の課題の少なくとも一部を解決するために、本発明は次の構成を採用した。即ち、本発明は、水素イオンを透過する固体高分子の電解質膜を挟んで水素極と酸素極とを備える燃料電池と、該燃料電池の発電時に要求される

供給材料を前記水素極および酸素極にそれぞれ供給する供給部とを備える燃料電池システムにおいて、前記供給部は、前記水素極および酸素極の少なくとも一方について pH 雰囲気を制御することにより、前記水素極の pH を前記酸素極の pH 以上とする pH 制御手段を備えるものとした。pH 雰囲気は、種々の方法で制御可能であり、例えば、前記 pH 制御手段は、前記供給材料の少なくとも一部の pH を制御する手段とすることができる。ここで、供給材料とは、発電に必要となる燃料ガス、酸化ガスおよび固体高分子膜を加湿するための加湿水などが挙げられる。pH 制御は、水素極と酸素極の双方について行うものとしてもよいし、いずれか一方について行うものとしてもよい。

【0008】 pH とは、水素イオン濃度を  $a_H$  とすれば、「 $pH = -\ln(a_H)$ 」で定義される値である。上記 pH 制御手段は、水素極の水素イオン濃度を酸素極の水素イオン濃度よりも低く制御する手段と同義であ

$$E_H = E_{H0} + (RT/F) \times pH \quad \dots (3)$$

$$E_O = E_{O0} - (RT/F) \times pH \quad \dots (4)$$

R：気体定数；

T；絶対温度（ケルビン温度）；

F：ファラデー定数；

$E_{H0}$ ：pH=0 の場合の水素極電位（0 V）；

$E_{O0}$ ：pH=0 の場合の酸素極電位（1.23 V）；

【0011】図1は pH 値と水素極および酸素極の平衡電位の理論値を示すグラフである。上記ネルンストの式（3）（4）を図示したものであり、実線が酸素極の平衡電位、破線が水素極の平衡電位を示す。図示する通り、pH 値が増加するにつれて各極の電位は低下する。但し、上式（3）（4）から明らかな通り、それぞれの pH 値における各極の電位差は 1.23 V で一定である。例えば、pH 値が図中の pH1 の状態で燃料電池を運転した場合、酸素極の電位は点  $V_{O1}$  で表される値となり、水素極の電位は点  $V_{H1}$  で表される値となる。このとき燃料電池の起電圧は酸素極と水素極の電位差、即ち図中の電圧  $V_1$  に相当し、理論的には 1.23 V となる。従来、燃料電池では、水素極と酸素極の pH は何ら制御されておらず、両極の pH がほぼ等しい状態で運転されてきた。両極の pH がほぼ等しい状態で運転する限り、いかなる pH で運転するかに関わらず起電圧の理論値は 1.23 V である。

【0012】これに対し、本発明の燃料電池システムでは、水素極の pH が酸素極の pH よりも高くなるように制御される。このように両極の pH に偏差がある状態の一例を図1に示した。例えば、酸素極の pH 値が pH0 である場合、水素極の pH 値は pH0 よりも高い値 pH<sub>h</sub> に制御される。この結果、酸素極の電位は図中の点  $V_{O2}$  で表される値となり、水素極の電位は図中の点  $V_{H2}$  で表される値となる。セルの起電圧は両者の差異、即ち図中の値  $V_2$  となる。図および上式（3）（4）から明

る。上記構成を有する燃料電池システムによれば、以下に示す通り、水素極と酸素極における pH の偏差に起因して単位セル当たりの起電圧を向上することができる。この結果、本発明の燃料電池システムを用いて電源装置を構成すれば、要求される電圧を出力するために必要となるセル数が低減でき、電源装置の小型化や製造コストの低減などを図ることができる。

【0009】 pH の偏差と起電圧との関係について説明する。燃料電池の各セルで生じる起電圧は、水素極と酸素極の電位差である。両極では、それぞれ先に示した反応式（1）（2）で示す反応が生じており、発電中は各極での反応が平衡状態にある。一般に平衡状態にある場合の各極の電位は、ネルンストの式と呼ばれる関係式で表されることが知られている。ネルンストの式によれば、水素極の平衡電位  $E_H$ 、酸素極の平衡電位  $E_O$  は、それぞれ次式（3）（4）で表される。

【0010】

$$E_H = E_{H0} + (RT/F) \times pH \quad \dots (3)$$

$$E_O = E_{O0} - (RT/F) \times pH \quad \dots (4)$$

らかな通り、この電圧は理論値 1.23 V よりも大きい。このように、水素極の pH が酸素極の pH よりも高くなるように制御することによって、理論値よりも高い起電圧を得ることができる。上述した理論値は、電流を流していない状態での起電圧であるが、この電圧を向上することにより、通電時の電圧も向上させることができる。ネルンストの式自体は周知の関係式であるが、燃料電池において起電圧の向上という観点からこの関係式を再検討した結果、水素極と酸素極で電解質層の pH 値の偏差が起電圧の向上につながることを見出した点に本願の第1の技術的意義がある。また、供給材料の少なくとも一部の pH を制御することによって pH 雰囲気を制御する構成においては、かかる方法によって、水素極と酸素極の pH の制御が、両極に供給される供給材料の少なくとも一部の pH を制御することによって比較的容易に実現できることを見いだした点に第2の技術的意義がある。

【0013】図1および上式（3）（4）から明らかな通り、本発明において水素極側の pH 値と酸素極側の pH 値の差違は、目標起電圧に応じて設定することができる。図1等示したのはあくまでも理論値であり、実際には種々の損失に起因する電圧降下も考慮して両極の pH 値の差違を設定する。

【0014】ここで、前記 pH 制御手段は、以下の理由から、前記水素極の pH がアルカリ領域に入らない範囲で、前記制御を行う手段であるものとするのが望ましい。水素極の pH は酸素極の pH よりも大きいから、このことは、pH の上限がアルカリ領域に入らない範囲で、前記制御を行うことと同義である。アルカリ領域では、水酸化物イオン ( $OH^-$ ) が過剰に存在するようになる。この結果、水素極で水素イオン ( $H^+$ ) と水酸化物

イオン ( $\text{OH}^-$ ) などの反応が生じ、発電に寄与する水素イオンの量が低減してしまう。ここで、アルカリ領域とは、発電を阻害する程過剰に水酸化イオン ( $\text{OH}^-$ ) が存在する pH 領域を意味する。従って、かかる弊害が生じない範囲で水素極の pH を、中性 ( $\text{pH}=7$ ) よりもアルカリ側の領域に制御するものとしてもよい。もちろん、pH が 7 以下の範囲で制御することがより好ましいことは言うまでもない。

【0015】また、前記 pH 制御手段は、該燃料電池システム内で前記供給材料が通過する部位の酸に対する耐食性に基づいて定まる pH の下限値に対し、前記酸素極の pH が同等以上となる範囲で、前記制御を行う手段であるものとするのが望ましい。供給材料が通過する部位とは、供給側のみならず排出側も含む。燃料ガス、酸化ガス、加湿水が通過する部材であるセパレータや、セルで生成された生成水を排出する流路などが相当する。pH の下限値は、これらの部位の材質や燃料電池システムの寿命を考慮して設定することができる。例えば、これらの部位をいわゆるステンレス材料で構成した場合には、pH の下限値を 2 程度にすることが望ましい。

【0016】本発明において、pH 制御手段は、種々の構成を採ることができ、前記供給部は、前記供給材料の一つとして前記電解質膜を加湿する加湿水を供給するユニットである場合には、前記 pH 制御手段は、該加湿水に pH 調整作用を備える化合物を混入することにより、前記制御を行う手段であるものとするができる。加湿水は燃料ガスおよび酸化ガスに混入して供給するものとしてもよいし、これらのガスとは別に供給するものとしてもよい。pH 調整作用を備える化合物は、水素極については、pH を高める作用を奏するアルカリ性の化合物、例えば、水酸化ナトリウム、水酸化カリウムなどが該当する。酸素極については、pH を低減する作用を奏する酸性の化合物が該当する。特に、プロトン導電性を確保するためのイオン交換基としてスルホン酸基を含む固体高分子膜を用いる場合には、酸素極側には硫酸を混入することが望ましい。

【0017】加湿水の供給は酸素極、水素極のいずれか一方について行うものとしても構わない。酸素極では発電時の反応により水が生成されるから、水素極に加湿水を供給するのが通常である。従って、pH 制御手段は、例えば、アルカリ性の化合物を混入した加湿水を水素極側のみに供給する態様で構成することができる。こうすれば、従来の固体高分子膜型の燃料電池システムから少ない改変で本願の燃料電池システムを構成することができる利点がある。

【0018】pH 制御手段は、いわゆる開ループ制御によって pH を制御するものとしてもよいが、フィードバック制御することがより望ましい。例えば、前記水素極および前記酸素極から排出される排出物の pH を検出する pH 検出手段を備え、該検出された pH に基づいて制

御を行う構成を採ることができる。水素極、酸素極の pH は、供給される燃料ガス、酸化ガス、加湿水の量、発電により生成される生成水の量などに応じて変化するため、フィードバック制御することで精度良く pH を制御することが可能となる。

【0019】なお、発電中は水素極で水素イオンが消費され、酸素極では水が生成されるから、排出物の pH と水素極、酸素極の pH とは必ずしも一致しない。かかる差違による影響は、次の方法で回避することができる。第 1 に予め実験などで排出物の pH と水素極、酸素極の pH との対応関係を求め、その結果を記憶した記憶手段を用意し、pH 制御手段は、該記憶手段を参照して供給材料の pH を調整する構成を採る方法である。第 2 に必要な起電圧を得るための水素極、酸素極それぞれの pH 目標値を、排出物の pH に基づいて設定する方法である。その他、排出物の pH と水素極、酸素極の pH とが一致すると仮定して制御してもよい。

【0020】本発明は以上で説明した燃料電池システムとして構成する他、種々の態様で構成することができる。例えば、水素極と酸素極の pH を制御して燃料電池システムを運転する運転方法、pH の制御方法などの態様で構成してもよい。

【0021】

【発明の実施の形態】本発明の実施の形態を実施例に基づき以下の順序で説明する。

A. 燃料電池システムの全体構成：

B. 燃料電池の構成：

C. pH 制御処理：

D. 変形例：

【0022】A. 燃料電池システムの全体構成：図 2 は実施例としての燃料電池システムの全体構成を示す説明図である。燃料電池システムは、大きくは燃料電池 10 と、そこに燃料ガス、酸化ガス、加湿水を供給する供給部 200 とから構成される。燃料電池 10 は、水素導電性を有する高分子を電解質膜として利用した固体高分子型燃料電池である。供給部 200 は、燃料電池の水素極（以下、アノードと呼ぶ）に水素リッチな燃料ガスを加湿水と共に供給し、酸素極（以下、カソードと呼ぶ）に酸化ガスを加湿水と共に供給する。本実施例では酸化ガスとして空気を用いている。

【0023】供給部 200 の構成のうち、アノード側に燃料ガスと加湿水を供給する構成について説明する。加湿水は加湿水タンク 209 に蓄えられている。供給部 200 は、加湿水の pH を調整するための pH 調整液を調整液タンク 208 に蓄えている。後述する通り、アノード側の pH はカソード側の pH よりも高くなるように調整されるから、pH 調整液としては、水酸化ナトリウム水溶液、水酸化カリウム水溶液などのアルカリ性溶液が用いられる。加湿水は pH 調整液と pH 調節器 204 で混合され所定の pH に調整された後、加湿器 202 に供



給される。加湿器202には、別途、メタノール、炭化水素を改質して得られた水素リッチな燃料ガス、または水素吸蔵合金などを利用して蓄えられる水素ガスが供給されている。加湿器202に燃料ガスを通過させると、燃料ガス中にpHが調整された加湿水が霧状に分布した供給ガスが生成される。供給ガスは、この状態でアノード側の燃料ガス供給口35に供給される。

【0024】加湿水のpHを制御することにより、アノード側に供給される供給ガスのpHを制御することができる。かかる制御は制御ユニット220によって実現される。制御ユニット220は、内部にCPU、RAM、ROMを備えるマイクロコンピュータとして構成されている。制御ユニットによるpH制御を可能とするために、供給部200には、加湿水のpHを検出するpH計210、加湿器202に供給される加湿水のpHを検出するpH計206、更に燃料電池10のアノード側から排出される排出物、例えば生成水のpHを検出するpH計232が設けられている。各pH計で検出された信号は、制御ユニット220に入力される。この検出結果に基づき、制御ユニット220は、後述する制御処理に従って、pH調節器204を制御する。図中では、検出信号および制御信号を破線で示した。

【0025】カソード側に酸化ガスと加湿水を供給する構成は、アノード側と同様である。即ち、pH調節器203、調整液タンク207により加湿水のpHを調整して、加湿器201で酸化ガス中に加湿水が霧状に分布した供給ガスを生成し、カソード側の酸化ガス供給口33に供給する。後述する通り、カソード側では、供給ガスが酸性となるようにpHを低い値に制御する。従って、アノード側と異なり、pH調整液として、硫酸を用いた。カソード側のpH制御も制御ユニット220が実行する。この制御処理を可能とするために、カソード側にも、アノード側と同様、加湿器201に供給される加湿水のpHを検出するpH計205、燃料電池10のカソード側から排出される排出物、例えば生成水のpHを検出するpH計231が設けられている。

【0026】B. 燃料電池の構成：図3は本実施例の燃料電池10の外観を表わす斜視図である。燃料電池10は、図示する通り、セル100を所定数積層して形成される。セル100は、それぞれ固体高分子型燃料電池として形成されており、各セルが1V強の起電圧を生じる。セル100は、セパレータ110、120で酸素極136、電解質膜132、水素極134をこの順序に挟んだ構造をなしている。燃料電池10では、隣接するセル100のセパレータ110、120はそれぞれ共有されている。セル100の詳細構造については後述する。

【0027】燃料電池10は、一端からエンドプレート12、絶縁板16、集電板18、複数のセル100、集電板20、絶縁板22、エンドプレート14の順に積層されて構成される。エンドプレート12、14は、剛性

を確保するため、鋼等の金属によって形成されている。集電板18、20は鍛密質カーボンや銅板などガス不透過な導電性部材によって形成され、絶縁板16、22はゴムや樹脂等の絶縁性部材によって形成されている。集電板18、20にはそれぞれ出力端子19、21が設けられており、燃料電池10で生じた電力を出力可能となっている。

【0028】一方のエンドプレート14には、燃料ガス供給口35、燃料ガス排出口36、酸化ガス供給口33、酸化ガス排出口34、冷却水供給口31、冷却水排出口32が設けられている。燃料ガス供給口35から燃料電池10に供給された燃料ガスは、エンドプレート12に向かって流れながら各セル100に分配される。各セル100に配分された燃料ガスは、図中の上方から下方にセル100内の流路を流れた後、エンドプレート14側に流れ、燃料ガス排出口36から排出される。酸化ガスも同様に、酸化ガス供給口33から供給された後、エンドプレート12に向かって流れながら各セル100に分配され、各セル100内の流路を流れた後、酸化ガス排出口34から排出される。燃料電池10は、このようなガスの流れを実現できるように内部で各セル100のガス流路が形成されている。

【0029】燃料電池10の各セル100を構成する電解質膜132は、セパレータ110、120と接する周辺領域がシールされている。このシールは、セル100内部から燃料ガスおよび酸化ガスが漏れ出し、両者が混合するのを防止する役割を果たす。燃料電池10は、図示を省略したが、ボルトとナットで積層方向に所定の押圧力がかかった状態で締結されて保持される。押圧力を伴って積層状態を保持するためには、必ずしもボルトとナットを用いる必要はなく、例えばスタック収納ケースを用いるものとしてもよい。なお、ここでは燃料電池10が単一のスタックで構成されている場合を例示したが、複数のスタックで構成するものとしてもよい。

【0030】図4はセル100の構造を示す斜視図である。セル100は固体高分子型燃料電池として構成されている。セル100は、電解質膜132を水素極134、酸素極136で挟み込み、さらにその両側をセパレータ110、120で挟んだ構造を有している。図示の都合上、酸素極136は、電解質膜132に隠れた位置に存在する。水素極134、酸素極136は、ガス拡散電極である。セパレータ110、120は水素極134、酸素極136と対向する面に複数の凹凸状のリブが形成されている。セパレータ110、120が、水素極134、酸素極136をさらに両側から挟み込むことによって、水素極134との間に燃料ガス流路112、酸素極136との間に酸化ガス流路122が形成される。セパレータ110、120は両面にリブが形成されており、片面は水素極134との間で燃料ガス流路112を形成し、他面は隣接するセル100が備える酸素極13

6との間で酸化ガス流路122を形成する。このように、セパレータ110、120は、ガス拡散電極との間でガス流路を形成するとともに、隣接するセル間で燃料ガスと酸化ガスの流れを分離する役割を果たしている。

【0031】電解質膜132は、固体高分子材料、例えばフッ素系樹脂により形成されたプロトン伝導性のイオン交換膜であり、湿潤状態で良好な電気伝導性を示す。電解質膜132としては、例えばナフィオン膜（デュボン社製）などを適用することができる。電解質膜132の表面には、触媒としての白金が塗布されている。本実施例では、触媒としての白金を担持したカーボン粉を有機溶剤に分散させ、電解質溶液（例えば、Aldrich Chemical社、Nafion Solution）を適量添加してペースト化した上で、電解質膜132上にスクリーン印刷する方法で触媒を塗布した。触媒層の形成方法は、他にも種々の方法を適用でき、例えば、上記触媒を担持したカーボン粉を含有するペーストを膜形成してシートを作製し、電解質膜132上にプレスするものとしてもよい。また、触媒には白金と他の金属からなる合金を用いることもできる。水素極134および酸素極136は、炭素繊維を織成したカーボンクロスにより形成されている。水素極134および酸素極136を炭素繊維からなるカーボンペーパーまたはカーボンフェルトにより形成するものとしてもよい。また、上述の触媒は、ガス拡散電極と電解質膜132との間に介在しておればよい。電解質膜132側に触媒を塗布する方法に代えて、水素極134および酸素極136の電解質膜132と接する側に、触媒を塗布するものとしてもよい。

【0032】セパレータ110、120は、ガス不透過の導電性部材、例えば、カーボンを圧縮してガス不透過とした緻密質カーボンにより形成されている。セパレータ110、120はその両面に、平行に配置された複数のリブが形成されている。リブは、必ずしも両面で平行に形成する必要はなく、面毎に直交するなど種々の角度で形成することができる。また、リブは燃料ガスおよび酸化ガスの流路を形成可能な形状であれば、必ずしも平行な溝状である必要はない。

【0033】セパレータ110、120には、その周辺部の2カ所に、円形断面の冷却水孔151、152が形成されている。この冷却水孔151、152は、セル100を積層した際に、燃料電池10を積層方向に貫通する冷却水路を形成する。セパレータ110、1120の各辺付近には、それぞれの辺に沿う細長い形状の燃料ガス孔153、154および酸化ガス孔155、156が形成されている。燃料ガス孔153、154および酸化ガス孔155、156は、セル100を積層することによって燃料電池10を形成した際に、燃料電池10を積層方向に貫通する燃料ガス流路112および酸化ガス流路122を形成する。本実施例では、図3の上方の辺に

沿って燃料ガス供給路、下方の辺に沿って燃料ガス排出路が形成される。また、左側の辺に沿って酸化ガス供給路、右側の辺に沿って酸化ガス排出路が形成される。

【0034】燃料電池10の燃料ガス供給口35は燃料ガス供給路につながっており、燃料ガス排出口36は燃料ガス排出路につながっている。燃料ガス供給口35から供給された燃料ガスは、燃料ガス供給路を通じて各セル100の燃料ガス流路112に流れ込む。そして、水素極134で所定の反応に供された後、燃料ガス排出路から燃料ガス排出口36に流出する。酸化ガスも同様の経路で流れる。燃料電池10の酸化ガス供給口33は酸化ガス供給路につながっており、酸化ガス排出口34は酸化ガス排出路につながっている。酸化ガス供給口33から供給された酸化ガスは、酸化ガス供給路を通じて各セル100の酸化ガス流路122に流れ込む。そして、酸素極136で所定の反応に供された後、酸化ガス排出路から酸化ガス排出口34に流出する。

【0035】燃料電池10では、5つのセル100ごとに1枚の割合で、冷却セパレータ140が設けられている。冷却セパレータ140は、セル100を冷却する冷却水路を形成するためのセパレータである。冷却セパレータ140には、冷却水孔を連絡する葛折状の冷却水溝142が形成されている。セパレータ110、120のうち冷却セパレータ140と対向する面は、リブのないフラットな面となっており、冷却セパレータ140に設けられた溝はセパレータ110、120との間で冷却水路を形成する。なお、セパレータ110、120および冷却セパレータ140は、緻密質カーボンの他、導電性を有する種々の材料によって形成することができる。例えば、剛性および伝熱性を重視して銅合金やアルミニウム合金などの金属で形成してもよい。また、冷却セパレータ140を設ける割合は、燃料電池10の要求出力に応じたセル100の発熱量、冷却水の温度および流量などの条件に応じて冷却に適した範囲で設定することができる。

【0036】以上の説明では、図示を省略したが、燃料電池10には、燃料ガス、酸化ガス、冷却水を供給する流路、排出する流路がそれぞれ設けられている。本実施例では、これらの流路は、いわゆるステンレス材料で形成されている。

【0037】C. pH制御処理：先に説明した通り、本実施例では、供給部200において、加湿水のpHを制御することによって、アノード、カソードそれぞれに供給される供給ガスのpHを制御することができる。以下、pH制御処理の内容について説明する。

【0038】アノード、カソードへの供給ガスのpHの目標値（目標pH）は、次の3つの条件に基づいて設定される。

第1の条件：各セル当たりの起電圧の向上

第2の条件：発電効率の向上

第3の条件：酸またはアルカリ腐食の防止

【0039】図5はpHの目標値の設定方法について示す説明図である。横軸にカソードのpH、縦軸にアノードのpHをとって示した。ここでは、まず理想的な状態を考えるものとし、縦軸、横軸は、それぞれセル100での発電に供される時点での供給ガスのpHを示しているものとする。先に図1およびネルンストの式(3)

(4)で説明した通り、セル100の起電圧の理論値は、アノードとカソードのpHの偏差によって変動し、アノードのpHがカソードのpHよりも高くなる程、大きくなる。かかる領域は、図5中の斜め線よりも左上の領域、即ち、矢印で示した領域となる。かかる領域に属するようにアノードの目標pH、カソードの目標pHを設定すれば、その値に応じて、セル当たりの起電圧を向上することができる。

【0040】第2の条件は、アノード側で生成された水素イオンの消耗を抑制することによって実現される。アノード側で生成された水素イオンは、電解質膜を移動してカソード側に至ることで発電に寄与する。水素イオンから水への反応がアノードで生じると、その分、水素イオンが無駄に消耗されることになり、発電効率が低下する。かかる反応を抑制するためには、アノードに存在する水酸化物イオン(OH<sup>-</sup>)を低減することが望ましい。かかる観点から、本実施例では、アノードのpHを7以下に設定するものとした。

【0041】第3の条件は、燃料電池システムを構成する材料の耐食性を考慮してpHの限界値を設定することによって満たされる。本実施例では、燃料電池10から燃料ガス、酸化ガス、冷却水を排出する流路、特に燃料電池10での生成水を含んだ酸化ガスを排出する流路の耐食性を評価としてpHの下限値を2に設定した。

【0042】以上で説明した3つの条件を満たす範囲は、図5中にハッチングを付した領域Aoptとなる。セル当たりの起電圧の目標値をVtgに設定すれば、該起電圧を満足するpHは図5に示す直線で表される。従って、領域Aopt内で、この直線上の点を適宜選択することにより、アノード、カソードの目標pHを設定することができる。例えば、図5中の点Pを選択すれば、アノード側の目標値はpHa、カソード側の目標値はpHcとなる。

【0043】理論的には、アノード、カソードの目標pHは、上述の条件に基づいて設定することができる。しかしながら、実際には、セル100を通過する間に、アノードでは水素イオンが発電に供され、カソードでは生成水が生じるため、供給ガスのpHは変動する。また、セル100での起電圧は種々の損失により理論値よりも低くなるのが通常である。これらの原因により、例えば、図5においてアノード側のpHをpHa、カソード側のpHをpHcに制御しても、実際にVtgの起電圧を実現できるとは限らない。

【0044】本実施例では、かかる影響を考慮した現実的な方法としてアノード、カソードの排出物、つまりオフガスと生成水のpHに基づいてアノード、カソードの目標pHを設定した。即ち、実験的に供給ガスのpHを種々の値に変動させ、アノード、カソードの排出物のpHおよび起電圧の関係を計測する。この結果、目標の起電圧を実現し得るアノード、カソードの排出物pHを設定した。実際の運転時には、排出物のpHがこの目標値となるよう、フィードバック制御することにより、目標の起電圧を実現することができる。第2の条件、第3の条件については、排出物のpHが2以上、7以下となるように設定した。

【0045】pHの制御は、制御ユニット220が次に示すpH制御処理ルーチンを実行することによって行われる。図6はpH制御処理ルーチンのフローチャートである。燃料電池システムの運転中、制御ユニット220が周期的にこの処理を実行する。処理が開始されると、制御ユニット220のCPUはアノード、カソードの目標pHを入力する(ステップS10)。この目標pHは、先に説明した通り、アノード、カソードから排出される排出物、主として生成水の目標pHとして設定された値である。なお、この目標pHは、アノード、カソードについて固定された値として設定されていてもよいし、アノードとカソードのpHの偏差で設定されていてもよい。

【0046】次に、実際に排出される生成水のpHが上述の目標値となるようにフィードバック制御によりアノード、カソードの供給ガスのpHを制御する。このため、CPUは、まず、図2に示したpH計231、232の検出信号に基づき生成水のpHを検出する(ステップS12)。そして、pHの目標値と検出された生成水pHの偏差に基づいて、加湿器201、202に供給される加湿水(以下、供給水と呼ぶ)の目標pHを設定する(ステップS14)。目標値は、予め実験などによって設定された所定のゲインを偏差に乗じることで設定する方法、偏差と目標値との関係をテーブルで記憶しておく方法などによって設定することができる。

【0047】次に、pH計205、206により、実際に加湿器201、202に供給されている供給水のpHを検出し、目標pHとの偏差に基づいてpH調整液の量を設定する。この際、加湿水タンク209に蓄えられている加湿水が酸性またはアルカリ性に偏っている可能性もあるから、pH計210で加湿水のpHを計測し、その結果も考慮してpH調整液の量を設定することになる(ステップS16、S18)。図6中には、加湿水のpHを考慮する方法の一例として「供給水pHの目標値－(供給水pH－加湿水pH)」に基づいてpH調整液の量を設定する場合を例示した。この態様に限定されるものではない。pH調整液の量は、ステップS14と同様、予め設定されたゲインを用いる方法やテーブルを用

いる方法などによって設定することができる。CPUは、pH調節器203、204に供給される加湿水、pH調整液の量をそれぞれ制御して、供給水を目標pHに制御する(ステップS20)。

【0048】ここでは、供給水の目標値、pH調整液の量を段階的に設定するものとして説明したが、実際の制御量はpH調整液の量であるため、生成水のpH、供給水のpH、加湿水のpHの検出結果に基づいて、pH調整液の量を演算またはテーブルにより、直接設定する態様を採ることも可能である。本実施例では、生成水、供給水、加湿水の3カ所でpH値を検出してpH制御する態様を例示した。加湿水へのpH調整液の量を制御してpHを制御する場合は、比較的応答性が低いため、このように複数箇所でのpHを検出することにより、応答性および制御の精度を向上することができる。もちろん、燃料電池10の生成水のpHのみを検出して、これに基づくフィードバックを行うものとしても構わない。この場合は、pH計206、210を削除することができ、システムの簡略化を図ることができる。

【0049】本実施例では、燃料電池10の生成水のpHで目標値を設定し、pH制御する態様を例示した。pHの目標値はシステムの構成に応じて種々の設定が可能である。例えば、供給水のpHと起電圧との関係を実験などによって把握できる場合には、供給水のpHで目標値を設定し、これに基づく制御を行うものとしてもよい。セル100のいずれかの部位でpHを検出可能な場合には、これに基づく制御を行うことも可能である。

【0050】以上で説明した本実施例の燃料電池システムによれば、アノード、カソードに供給される供給ガスのpHを制御することにより、起電圧の向上を図ることができる。この結果、目標の起電圧を得るために要求されるセル数を低減することができ、システムを小型化することができる。また、アノード側のpHは、水酸化物イオン(OH<sup>-</sup>)が過剰に存在しない範囲に制御されるから、水素イオンが無駄に消費されることを抑制し、発電効率を向上することができる。さらに、pHの下限值は、流路の酸に対する耐食性を考慮した範囲で設定されるから、燃料電池システムの寿命を極端に縮めることもない。

【0051】また、本実施例の燃料電池システムは、アノード、カソードの加湿に使用される加湿水を用いるため、比較的容易に各極のpHを制御することができる利点もある。一般に固体高分子型燃料電池では、電解質膜の加湿が必要であり、加湿水を供給する機構が備えられているのが通常であるため、この機構を利用してpHを制御することができる。従って、pH制御に際し、燃料電池システムの大がかりな改変を要しない利点がある。

【0052】D. 変形例：図7は変形例としての燃料電池システムの全体構成を示す説明図である。上述の実施例では、アノード、カソードの双方についてpHの制御

を行う態様を例示した。図1等で既に説明した通り、目標起電圧を実現する観点からは、アノードとカソードのpHの偏差が重要である。従って、pHを調整する機構は、アノード、カソードのいずれか一方に設けるものとしてもよい。変形例の燃料電池システムでは、かかる観点から、アノード側にのみpHを調整する機構を設けた場合を例示した。

【0053】変形例の燃料電池システムでは、図示する通り供給部200Aにおいて、アノード側には、実施例と同様、pH調節器204、加湿器202など、pHを制御するための機構が備えられている。カソード側については酸化ガスが直接供給される。カソード側は発電時の反応による生成水で十分に加湿されるため、加湿水の供給も行わない。

【0054】制御ユニット220Aはアノード側のpH調整液の量を制御することによって、カソードとアノードのpHの偏差を目標値に制御する。かかる制御を実現するために、アノード側について、実施例と同様、生成水、供給水、加湿水のpHをpH計232、206、210によって検出する。カソード側については生成水のpHのみをpH計231で検出する。

【0055】制御処理の内容は、実施例と同じである(図6参照)。但し、実施例では、アノード、カソードの目標pHがそれぞれ設定されているものとして説明したが、変形例では、アノード側のpHの目標値が、pH計231で検出されたカソード側の生成水のpHに偏差の目標値を加えて設定される点で相違する。こうして設定された目標pHを実現するようにpH調節器204を制御して、pH調整液の量を制御する点は実施例と同じである。

【0056】変形例の燃料電池システムによれば、アノードにのみpHを制御する機構を設ければ済むため、システムの構成が一層簡略化できる利点がある。一般に固体高分子型燃料電池では、水素イオンが水分子と結合してヒドラニウムイオンとなってカソード側に移動することに起因してアノード側の加湿が必須とされる。変形例では、アノード側にのみpHを制御する機構を設けるため、電解質膜の加湿に必要な機構と兼用することができる。更にシステムを簡略化できる利点がある。なお、変形例においても、pH計206、210を削除する構成を採ることも可能である。

【0057】なお、変形例では、カソード側のpHを直接制御することはできないが、流路の耐食性を考慮すると、通常の運転時にカソード側のpHは大きく変化させないことが望ましい。

【0058】以上で説明した実施例および変形例では、燃料ガス、酸化ガスに加湿水を混入して燃料電池10に供給する態様を例示した。これに対し、加湿水をガスとは別に供給する態様を採るものとしてもよい。この場合も加湿水へのpH調整液の量を制御することで各極のp

Hを制御することができる。pH調整液を燃料電池10に直接供給することによってpH制御を行うものとしてもよい。pH制御は必ずしも液体で行う必要もなく、例えばアノード極で加湿水と結合することによりアルカリ性を示すアンモニアなどの気体を用いるものとしてもよい。本発明は燃料電池10に供給される種々の供給材料を介してアノード、カソードのpHを制御する種々の態様を採ることができる。以上、本発明の種々の実施例について説明したが、本発明はこれらの実施例に限定されず、その趣旨を逸脱しない範囲で種々の構成を採ることができることはいうまでもない。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】 pH値と水素極および酸素極の平衡電位の理論値を示すグラフである。

【図2】 実施例としての燃料電池システムの全体構成を示す説明図である。

【図3】 本実施例の燃料電池10の外観を表わす斜視図である。

【図4】 セル100の構造を示す斜視図である。

【図5】 pHの目標値の設定方法について示す説明図である。

【図6】 pH制御処理ルーチンのフローチャートである。

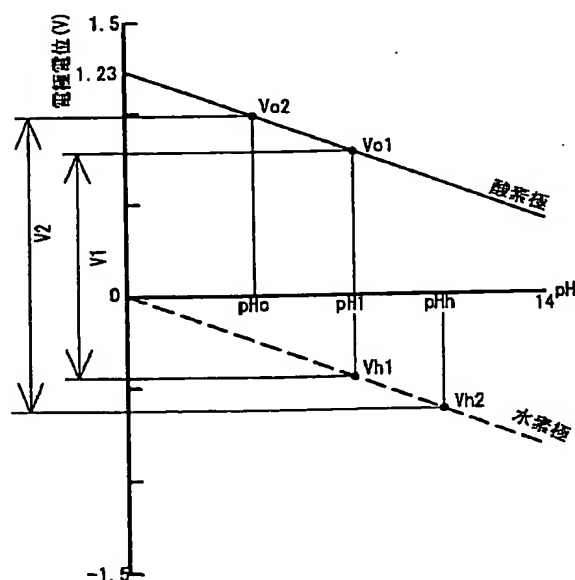
【図7】 変形例としての燃料電池システムの全体構成を示す説明図である。

#### 【符号の説明】

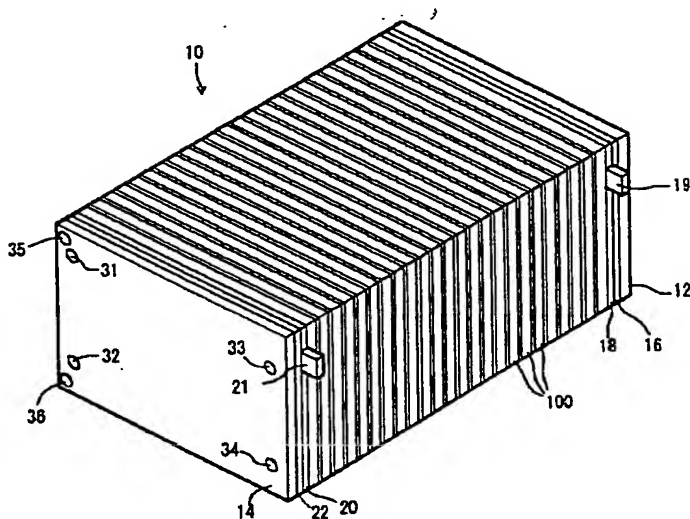
10…燃料電池  
12、14…エンドプレート  
16…絶縁板

18…集電板  
19…出力端子  
20…集電板  
22…絶縁板  
31…冷却水供給口  
32…冷却水排出口  
33…酸化ガス供給口  
34…酸化ガス排出口  
35…燃料ガス供給口  
36…燃料ガス排出口  
100…セル  
110…セパレータ  
112…燃料ガス流路  
122…酸化ガス流路  
132…電解質膜  
134…水素極  
136…酸素極  
140…冷却セパレータ  
142…冷却水溝  
151…冷却水孔  
153…燃料ガス孔  
155…酸化ガス孔  
200、200A…供給部  
201、202…加湿器  
203、204…pH調節器  
205、206、210、231、232…pH計  
207、208…調整液タンク  
209…加湿水タンク  
220、220A…制御ユニット

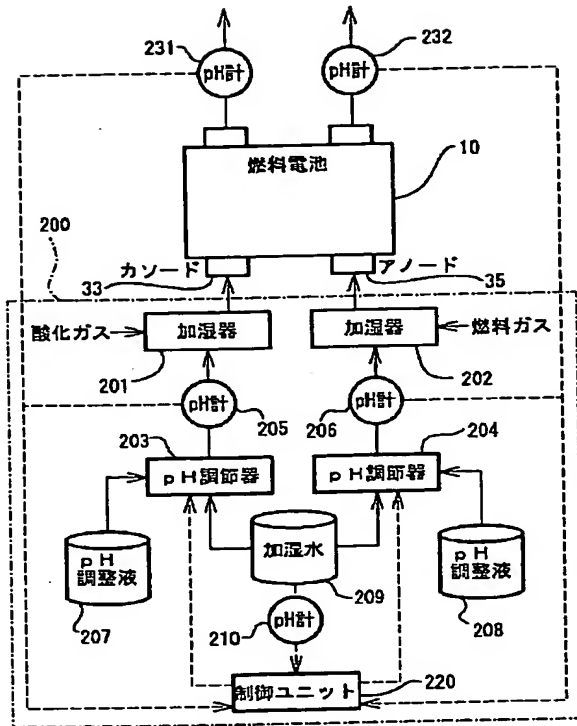
【図1】



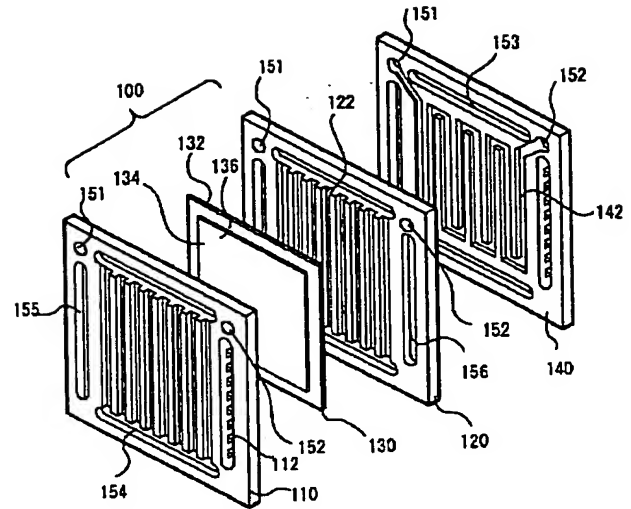
【図3】



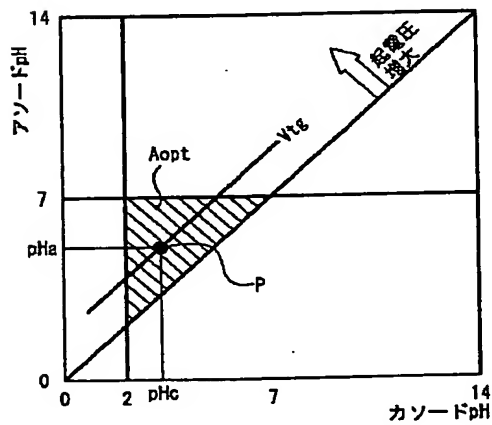
【図2】



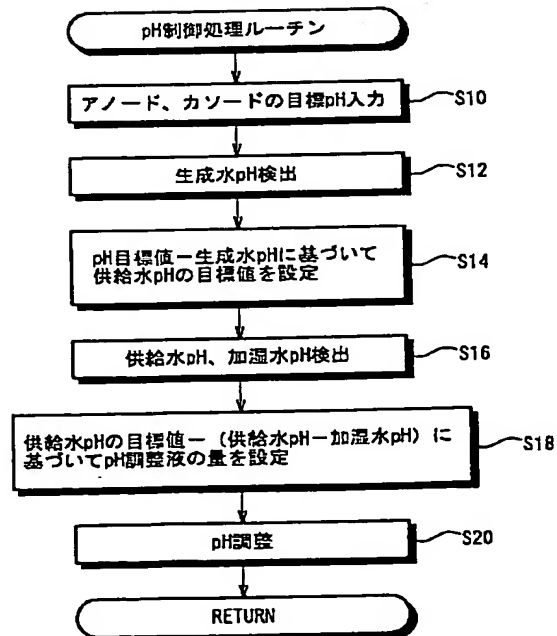
【図4】



【図5】

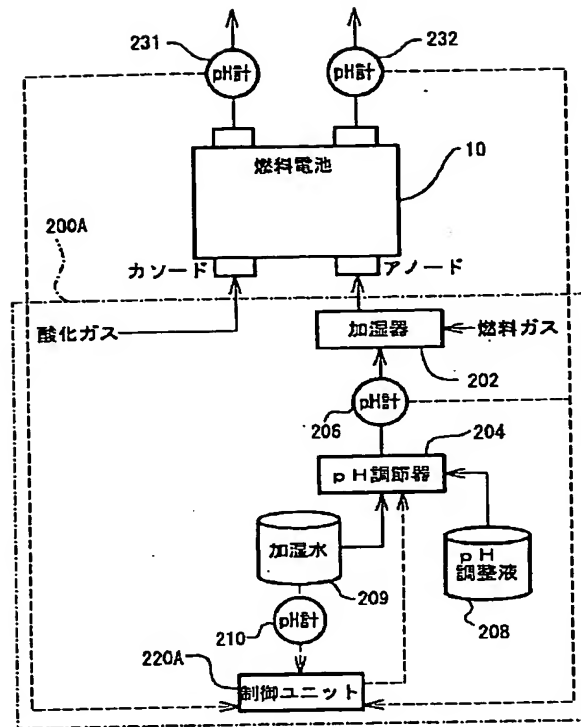


【図6】





【図7】



**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☒ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**